

DIALOG(R)File 352:Derwent WPI  
(c) 2004 Thomson Derwent. All rts. reserv.

012305678 \*\*Image available\*\*

WPI Acc No: 1999-111784/199910

XRPX Acc No: N99-081655

Manufacturing method of organic electroluminescence element for backlight of flat LC display - involves forming various layers of element inside vacuum chamber in the absence of atmospheric air

Patent Assignee: MATSUSHITA DENKI SANGYO KK (MATU )

Number of Countries: 001 Number of Patents: 001

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applicat No	Kind	Date	Week
JP 10335061	A	19981218	JP 97146189	A	19970604	199910 B

Priority Applications (No Type Date): JP 97146189 A 19970604

Patent Details:

Patent No	Kind	Lan Pg	Main IPC	Filing Notes
JP 10335061	A	8	H05B-033/10	

Abstract (Basic): JP 10335061 A

NOVELTY - A catholyte (15), an organic thin film, a light emission layer (14) and an anodised layer (12) are laminated on a transparent substrate (11). The entire arrangement is sealed by a sealing material. The formation process is done in a vacuum chamber (1) in the of absence of atmospheric air. Chamber pressure is adjusted to a low value of 10<sup>-4</sup>, 10<sup>-6</sup> or 10<sup>-10</sup> torr. DETAILED DESCRIPTION - An apparatus for manufacturing the organic element is also claimed independently.

USE - For backlight of flat LC display, light source in display optical communication system.

ADVANTAGE - Since the entire process is done in the absence, absorption of moisture in the air by various layers during manufacture is avoided. Hence, degradation of element is prevented. Life of the element is increased. Bonding of sealing material with a transparent substrate further prevents the moisture absorption. DESCRIPTION OF

DRAWING(S) - The drawing shows the sectional view of the element. (11) Substrate; (12) Anodised layer; (15) Catholyte.

Dwg. 3/5

Title Terms: MANUFACTURE; METHOD; ORGANIC; ELECTROLUMINESCENT; ELEMENT;  
FLAT; LC; DISPLAY; FORMING; VARIOUS; LAYER; ELEMENT; VACUUM; CHAMBER;  
ABSENCE; ATMOSPHERE; AIR

Derwent Class: U12; U14; W05; X26

International Patent Class (Main): H05B-033/10

International Patent Class (Additional): H05B-033/26

File Segment: EPI

06051961    \*\*Image available\*\*

METHOD AND DEVICE FOR MANUFACTURING ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

PUB. NO.:        10-335061 [JP 10335061 A]

PUBLISHED:      December 18, 1998 (19981218)

INVENTOR(s):    KOMATSU TAKAHIRO

                 IWANAGA HIDEAKI

                 GYOTOKU AKIRA

                 HARA SHINTARO

APPLICANT(s):   MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD [000582] (A Japanese Company  
                 or Corporation), JP (Japan)

APPL. NO.:       09-146189 [JP 97146189]

FILED:           June 04, 1997 (19970604)

INTL CLASS:      [6] H05B-033/10; H05B-033/26

JAPIO CLASS:     43.4 (ELECTRIC POWER -- Applications); 14.2 (ORGANIC  
                 CHEMISTRY -- High Polymer Molecular Compounds); 44.2  
                 (COMMUNICATION -- Transmission Systems)

JAPIO KEYWORD: R002 (LASERS); R003 (ELECTRON BEAM); R007 (ULTRASONIC WAVES);  
                 R011 (LIQUID CRYSTALS); R020 (VACUUM TECHNIQUES); R044  
                 (CHEMISTRY -- Photosensitive Resins); R124 (CHEMISTRY --  
                 Epoxy Resins); R125 (CHEMISTRY -- Polycarbonate Resins)

ABSTRACT

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic EL element, in which the change with the lapse of time such as growth of dark spot and lowering of luminance is reduced so as to obtain the long lifetime, by manufacturing an organic EL element from a process for forming to a process for sealing with the sealing material without exposing the EL element with the atmospheric air.

SOLUTION: Etching is performed to a glass substrate, which is formed with an ITO film as a positive electrode layer over the whole surface, by using hydrochloric acid so as to form a positive electrode layer having the predetermined pattern. The glass substrate is washed by the ultrasonic washing using the aminebase organic compound detergent, and washed by the ultrasonic washing using pure water, and washed with the ammonium hydrogen peroxide solution, and washed with the pure water. Moisture is dried by a nitrogen blower, and finally heated for drying. This washed glass substrate 3 is set in a vacuum chamber 1, and internal pressure of the vacuum chamber 1 is lowered to a vacuum degree at  $2 \times 10^{-6}$  Torr or less, and TPD is used as a deposition source 2 so as to form a hole transport layer. Continuously, Alq3 is used as a deposition source so as to form a light emitting layer. AlLi, which includes Li in the same vacuum condition, is used as a deposition source 2 so as to form a negative electrode layer of a thick film at 2000 nm.

?

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-335061

(43) 公開日 平成10年(1998)12月18日

(51) Int. Cl. <sup>6</sup>

H05B 33/10

33/26

識別記号

F I

H05B 33/10

33/26

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 8 頁)

(21) 出願番号 特願平9-146189

(22) 出願日 平成 9 年(1997) 6 月 4 日

(71) 出願人 000005821

松下電器産業株式会社

大阪府門真市大字門真1006番地

(72) 発明者 小松 隆宏

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器  
産業株式会社内

(72) 発明者 岩永 秀明

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器  
産業株式会社内

(72) 発明者 行徳 明

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器  
産業株式会社内

(74) 代理人 弁理士 滝本 智之 (外 1 名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機 E L 素子の製造方法及びその製造装置

(57) 【要約】

【課題】 外部から進入する水分や酸素が有機 E L 素子の信頼性を損なわせるため、この進入を防ぎ経時変化の少ない長寿命化を図った有機 E L 素子を提供することを目的とする。

【解決手段】 本発明の有機 E L 素子の製造方法は、透明または半透明の基板上に積層された陽極層、有機薄膜、陰極層を有する有機 E L 素子の外側を封止材によって封止する有機 E L 素子の製造方法であって、有機 E L 素子の形成工程から封止材による封止工程までを大気に曝すことなく行う構成を有する。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】透明または半透明の基板上に積層された陰極層、有機薄膜、陽極層を有する有機EL素子の外側を封止材によって封止した有機EL素子の製造方法であって、前記有機EL素子の形成工程から封止材による封止工程までを大気中に行うことを特徴とする有機EL素子の製造方法。

【請求項2】前記有機EL素子の形成工程から封止材による封止工程までを、 $1 \times 10^{-1}$  Torr  $\sim$   $1 \times 10^{-10}$  Torr 好ましくは  $1 \times 10^{-4}$  Torr  $\sim$   $1 \times 10^{-6}$  Torr の減圧下で行うことを特徴とする請求項1に記載の有機EL素子の製造方法。

【請求項3】前記透明または半透明の基板と、前記封止材の少なくとも一部分を光硬化性樹脂によって接着する接着工程を有することを特徴とする前記請求項1又は2に記載の有機EL素子の製造方法。

【請求項4】真空チャンバーと、前記真空チャンバーに接続された真空装置と、前記真空チャンバー内に配設された有機EL素子若しくは封止剤のいずれかを搬送し前記有機EL素子と封止材を押圧する搬送押圧手段及び前記有機EL素子と前記封止材の間に形成された接着剤層を硬化させる硬化手段と、を有することを特徴とする有機EL素子の製造装置。

【請求項5】接着剤の前記硬化手段が紫外線照射装置であることを特徴とする前記請求項4に記載の有機EL素子の製造装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は液晶表示用ディスプレイのバックライトやディスプレイや表示・光通信の光源などに用いられる電氣的発光素子である有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、有機EL素子と略す）の製造方法及びそれに用いる製造装置に関する。

## 【0002】

【従来の技術】EL（エレクトロルミネッセンス）素子とは、固体蛍光性物質の電界発光また、エレクトロルミネッセンスといわれる現象を利用した発光デバイスであり、現在無機系材料を発光体として用いた無機EL素子が実用化され、液晶ディスプレイのバックライトやフラットディスプレイ等への応用展開が図られている。しかしながら、無機EL素子は素子が発光させるために交流でしかも100V以上の高電圧が必要であること及び青色発光が難しく、R. G. B. 三原色によるフルカラー化が困難であることなどの課題を有していた。

【0003】一方、有機材料を用いたEL素子に関する研究も古くから行われていたが、低い輝度しか得られず本格的な実用化研究には至っていなかった。しかし、1987年にコダック社のC. W. Tangらにより提案された構造つまり、有機物質をホール輸送層および発光層の2層に分けた機能分離型の積層構造を有する有機E

L素子は、10V以下の低電圧にもかかわらず1000 cd/m<sup>2</sup>以上の高輝度発光を実現した。（C. W. Tang and S. A. Vanslyke: Appl. Phys. Lett., 51 (1987) 913）それにより、有機ELが俄然注目され、近年同様の構成を有する積層型の有機EL素子についての研究が盛んに行われてきている。

【0004】次に一般的な有機EL素子構成について、以下図面を用いて説明する。図5は一般的な有機EL素子の要部断面図である。図中11は透明なガラス基板、12はガラス基板11上にスパッタリング法や真空蒸着法などを用いて形成されたITOなどの透明電極膜で正孔注入電極となる陽極層、13はTPD（N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス（3-メチルフェニル）-1, 1'-ジフェニル-4, 4'-ジアミン）等の正孔輸送層、14はAlq<sub>3</sub>（8-Hydroxyquinoline Aluminum）等で形成された発光層、15は主にAlLi、MgAgなどの仕事関数の低い金属膜で形成された電子注入電極となる陰極層、16は防湿性物質からなる保護膜である。

【0005】以上のように構成された有機EL素子にITO側にプラス、陰極側にマイナスの直流電圧を印加することで発光層内での再結合、それによる励起子の生成、最後に励起状態から基底状態への移行によって発光が起きる。この様な発光機構に基づく有機EL素子において発光特性を向上させるには主として、a. 発光層、正孔輸送層等の有機膜の改善、b. 陽極層、陰極層の改善が必要となる。これらのうちb. の陰極層の改良は発光層へ電子を入りやすくすることを目的とするため、電子注入層または発光層との障壁を低くしなければならない。よって、陰極層の材料としては仕事関数が小さく電気伝導性の高いことが求められ、例えば、MgAg（米国特許4885211号公報）やAlLi（特開平5-121172号公報）等の合金が一般に用いられている。ところで、これら合金は非常に活性で化学的に不安定である。そのため、外部からの水分や酸素によって陰極材が腐食、酸化してしまい、発光面中に存在するダークスポットと呼ばれる未発光部の著しい成長や、輝度低下等の経時的劣化を生じさせ易くなる。また、有機EL素子に使用される発光層や正孔輸送層等の有機固体は、一般に水分、酸素に弱く、同様にダークスポットの成長や輝度低下を招く。したがって、実用的な有機EL素子やそれを用いたデバイスには有機材料や電極材料への水分及び酸素の進入を防ぐ目的で素子を封止し、信頼性を向上させなければならない。

【0006】有機EL素子の封止方法についてはこれまで様々な提案が成されてきた。例えば、無機ELにて実際に実用化されている方法、すなわち、背面電極の外側にガラス板を設け、背面電極とガラス板の間にシリコンオイルを封入する方法や、特開平5-089959号

公報で開示されている素子上に絶縁性無機化合物からなる保護膜を設け、その外側に電気絶縁ガラスまたは電気絶縁性気密流体からなるシールド層を設ける方法及び特願平 6-004065 号公報で開示されているように、吸水率 1% 以上の吸水物質と吸収率 0.1% 以下の防湿性物質からなる封止材を形成するなどの方法等である。

#### 【0007】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら上記従来の有機 EL 素子の封止方法では、真空中において有機 EL 素子を形成した後、いったん素子を真空チャンバーから取り出し、改めて素子封止を行うため素子部分への水分の進入を完全に抑えることはできず、その結果、未発光部位の成長を招いてしまうという課題があった。さらに、このような素子作製工程と封止工程を分離させた方法は多大の作業工数と生産工数を要し作業性や生産性に欠けるという課題があった。また、従来の有機 EL 素子の製造装置では、有機 EL 素子基板と封止材とを接着する機能を有していないため多大の作業工数を要し作業性や生産性に欠けるという課題があった。

【0008】本発明は上記課題を解決するもので、素子形成から封止までの各工程において素子部が水分分子や酸素に触れることを防止し、ダークスポットの成長、輝度の低下という経時変化の少ない、長寿命化を図った有機 EL 素子の製造方法を提供すること、及び真空チャンバー内で簡便に有機 EL 素子基板と封止材とを接着することができ有機 EL 素子の生産性を著しく向上できる有機 EL 素子の製造装置を提供することを目的とする。

#### 【0009】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するため、本発明は有機 EL 素子の外側を封止材によって保護する有機 EL 素子の製造方法において、前記有機 EL 素子の形成から封止材による封止までを大気に曝すことなく行うものである。これにより、ダークスポットの成長、輝度の低下という経時変化の少ない長寿命化を図った有機 EL 素子を提供することができる。

【0010】本発明の有機 EL 素子の製造装置は、有機 EL 素子あるいは封止材の少なくとも 1 つを搬送押圧できる機構と、接着剤硬化装置を有している。これにより、有機 EL 素子の製造装置内で簡便に有機 EL 素子基板と封止材とを接着することができ作業性や生産性を著しく向上できる有機 EL 素子の製造装置を提供することができる。

#### 【0011】

【発明の実施の形態】本発明の請求項 1 に記載の有機 EL 素子の製造方法は、透明または半透明の基板上に積層された陰極層、有機薄膜、陽極層を有する有機 EL 素子の外側を封止材によって封止する有機 EL 素子の製造方法であって、前記有機 EL 素子の形成工程から封止材による封止工程までの工程を大気に曝すことなく行うこととしたものであり、これにより EL 素子部への水分や酸

素の吸着及び接触を完全に抑えることができるという作用を有する。

【0012】本発明の請求項 2 に記載の有機 EL 素子の製造方法は、請求項 1 において、前記有機 EL 素子の形成工程から封止材による封止工程までを  $1 \times 10^{-1}$  Torr  $\sim 1 \times 10^{-10}$  Torr 好ましくは  $1 \times 10^{-4}$  Torr  $\sim 1 \times 10^{-6}$  Torr の減圧下で行うこととしたものであり、これにより EL 素子部への水分や酸素工程の吸着及び接触を完全に抑えることができるという作用を有する。

【0013】本発明の請求項 3 に記載の有機 EL 素子の製造方法は、請求項 1 又は 2 において、前記透明または半透明の基板と前記封止材の少なくとも一部分を光硬化性樹脂によって接着する接着工程を有することとしたものであり、これにより光硬化性樹脂の高耐質性と速い硬化性により外部からの水分や酸素を完全に遮断することができるという作用を有する。

【0014】本発明の請求項 4 に記載の有機 EL 素子の製造装置は、真空チャンバーと、前記真空チャンバーに接続された真空装置と、前記真空チャンバー内に配設された有機 EL 素子若しくは封止材のいずれかを搬送し前記有機 EL 素子と封止材を押圧する搬送押圧手段及び前記有機 EL 素子と前記封止材の間に形成された接着剤層を硬化させる硬化手段と、を有することとしたものであり、これにより、有機 EL 素子の製造装置内で簡便に有機 EL 素子基板と封止材とを接着することができるという作用を有する。

【0015】本発明の請求項 5 に記載の有機 EL 素子の製造方法は、請求項 4 において、前記硬化手段が紫外線照射装置であることとしたものであり、これにより、有機 EL 素子の製造装置内で簡便に有機 EL 素子基板と封止材とを接着することができるという作用を有する。

【0016】以下に本発明の実施の形態に有機 EL 素子の製造方法及びそれに用いる製造装置について、図面を用いて説明する。

【0017】（実施の形態 1）図 1 は本発明の一実施の形態における有機 EL 素子の製造装置の断面模式図であり、図 2 は本発明の一実施の形態における有機 EL 素子の断面模式図である。

【0018】図 1 及び図 2 において、1 は真空チャンバー、2 は蒸着源、3 はガラス基板 11 の表面に ITO 等の陽極層 12 が形成された ITO 基板、4 は有機 EL 素子部、13 は正孔輸送層、14 は発光層、15 は陰極層、5 は保持金具、6 は封止材、7 は接着部、8 は封止材移動機構、9 は接着剤硬化装置、10 は基板搬送押圧機構である。

【0019】まず、全面に陽極層 12 として ITO 膜が形成されたガラス基板 11 を所定のパターン形状に陽極層 12（膜厚 160 nm）を塩酸を用いてエッチングする。

【0020】ガラス基板11を洗剤（セミコクリーン、フルウチ化学社製）で5分間超音波洗浄した後、純水で10分間超音波洗浄し、さらにアンモニア過酸化水素溶液（アンモニア水：過酸化水素溶液：水＝1：1：5

（vol比））で5分間超音波洗浄した後、70℃の純水で5分間超音波洗浄を行い、窒素ブローアにて水分を飛ばし、最後に250℃の温度で加熱し乾燥させる。この様に洗浄したガラス基板3aを真空チャンバー1内にセットし、真空チャンバー1の内圧を $2 \times 10^{-6}$  Torr以下の真空度まで減圧した後、TPDを蒸着源2として約500nmの正孔輸送層4aを形成する。続いて、Alq3を蒸着源2として約750nmの発光層4bを形成する。次に、同一真空下にて15at%のLiを含むAlLi合金を蒸着源2とし、2000nmの膜厚の陰極層15を形成する。

【0021】本実施の形態における有機EL素子の構成は特に限定されるものではなく、例えば、上記に示した陽極層12／正孔輸送層13／発光層14／陰極層15以外の構造、陽極層／発光層／陰極層の単層型素子や陽極層／発光層／電子輸送層／陰極層の2層型構造及び陽極層／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極層の3層構造であっても良い。さらに、本発明の有機EL素子を構成する材料も限定するものではなく、前述した以外の種々の材料を用いて形成することが可能である。例えば、陽極層12の材料としてはITO膜以外に、ATO（ $\text{SnO}_2$ にSbをドーパ）、AZO（ $\text{ZnO}$ にAlをドーパ）等が挙げられる。また、正孔輸送層13の材料としては、正孔移動度が大で、成膜性が良く、透明である物が望ましく、例えば、特開平4-129191号公報、特開平4-13289号公報、特開平4-255692号公報に記載のポリヒン、テトラフェニルポリヒン銅、フタロシアニン、銅フタロシアニン、チタニウムフタロシアニンオキサイド等のポリフィリン化合物、1、1-ビス〔4-（ジ-*p*-トリルアミノ）フェニル〕シクロヘキサン、4、4'、4''-トリメチルトリフェニルアミン、N、N、N'、N'-テトラキス（*p*-トリル）-*p*-フェニレンジアミン、1-（N、N-ジ-*p*-トリルアミノ）ナフタレン、4、4'-ビス（ジメチルアミノ）-2-2'-ジメチルトリフェニルメタン、N、N、N'、N'-テトラフェニル-4、4'-ジアミノビフェニル、N、N'-ジフェニル-N、N'-ジ-*m*-トリル-4、N、N'-ジフェニル-N、N'-ビス（3-メチルフェニル）-1、1'-4、4'-ジアミン、4'-ジアミノビフェニル、N-フェニルカルバゾール等の芳香族三級アミン、4-ジ-*p*-トリルアミノスチルベン、4-（ジ-*p*-トリルアミノ）-4'-〔4-（ジ-*p*-トリルアミノ）スチルル〕スチルベン等のスチルベン化合物、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラ

ゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アニールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、シラザン誘導体、ポリシラン系アニリン系共重合体、高分子オリゴマー、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリデン系化合物、ポリ3-メチルチオフェン等の化合物を用いることができる。またポリカーボネート等の高分子中に低分子の正孔輸送材料を分散させた、高分子分散系の正孔輸送層も用いられる。発光層14の材料としては、可視領域に蛍光を有し、成膜性の良いことが求められ、例えば特開平4-255692号公報に記載のベンゾチアゾール系、ベンゾイミダゾール系、ベンゾオキサゾール系等の蛍光増白剤、金属キレート化オキシノイド化合物、スチリルベンゼン系化合物等を挙げることができる。その代表例としては、2、5-ビス（5、7-ジ-*t*-ペンチル-2-ベンゾオキサゾリル）-1、3、4-チアジアゾール、4、4'-ビス（5、7-ペンチル-2-ベンゾオキサゾリル）スチルベン、4、4'-ビス〔5、7-ジ-（2-メチル-2-ブチル）-2-ベンゾオキサゾリル〕スチルベン、2、5-ビス（5、7-ジ-*t*-ペンチル-2-ベンゾオキサゾリル）チオフィン、2、5-ビス〔〔5- $\alpha$ 、 $\alpha$ -ジメチルベンジル〕-2-ベンゾオキサゾリル〕チオフェン、2、5-ビス〔5、7-ジ-（2-メチル-2-ブチル）-2-ベンゾオキサゾリル〕-3、4-ジヒエニルチオフェン、2、5、-ビス（5-メチル-2-ベンゾオキサゾリル）チオフェン、4、4'-ビス（2-ベンゾオキサゾリル）ビフェニル、5-メチル-2-〔2-〔4-（5-メチル-2-ベンゾオキサゾリル）フェニル〕ビニル〕ベンゾオキサゾリル、2-〔2-（4-クロロフェニル）ビニル〕ナフト〔1、2-d〕オキサゾールなどのベンゾオキサゾール系、2、2'-（*p*-フェニレンジビニレン）-ビスベンゾチアゾールなどのベンゾチアゾール系、2-〔2-〔4-（2-ベンゾイミダゾリル）フェニル〕ビニル〕ベンゾイミダゾール、2-〔2-（4-カルボキシフェニル）ビニル〕ベンゾイミダゾールなどのベンゾイミダゾール系などの蛍光増白剤が挙げられる。前記金属キレート化オキシノイドの例としては、トリス（8-キノリノール）アルミニウム、ビス（8-キノリノール）マグネシウム、ビス（ベンゾ〔f〕-8-キノリノール）亜鉛、ビス（2-メチル-8-キノリノール）アルミニウムオキシド、トリス（8-キノリノール）インジウム、トリス（5-メチル-8-キノリノール）アルミニウム、8-キノリノールリチウム、トリス（5-クロロ-8-キノリノール）ガリウム、ビス（5-クロロ-8-キノリノール）カルシウム、ポリ〔亜鉛（II）-ビス（8-ヒドロキシ-5-キノリノール）メタン〕などの8-ヒドロキシキノリン系金属錯体やジリチウムエピンドリジオン等が

挙げられる。スチリルベンゼン系化合物としては、1、4-ビス(2-メチルスチリル)ベンゼン、1、4-(3-メチルスチリル)ベンゼン、1、4-ビス(2-メチルスチリル)ベンゼン、1、4-(3-メチルスチリル)ベンゼン、1、4-ビス(4-メチルスチリル)ベンゼン、ジスチリルベンゼン、1、4-ビス(2-エチルスチリル)ベンゼン、1、4-ビス(3-エチルスチリル)ベンゼン、1、4-ビス(2-メチルスチリル)2-メチルベンゼン等が挙げられる。

【0022】また、ジスチルピラジン誘導体も発光層に用いられ、その代表例としては、2、5-ビス(4-メチルスチリル)ピラジン、2、5-ビス(4-エチルスチリル)ピラジン、2、5-ビス[2-(1-ナフチル)ビニル]ピラジン、2、5-ビス(4-メトキシスチリル)ピラジン、2、5-ビス[2-(4-ビフェニル)ビニル]ピラジン、2、5-ビス[2-(1-ピレニル)ビニル]ピラジン等が挙げられる。さらに、ナフタルイミド誘導体、ベリレン誘導体、オキサジアゾール誘導体、アルダジン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、スチリルアミン誘導体、あるいはクマリン系誘導体、芳香族ジメチリディン誘導体さらに特開平4-132189号公報によれば、発光層としてアントラセン、サリチル酸塩、ピレン、コロネン等も挙げられる。

【0023】陰極層15の材料としては仕事関数の低い金属もしくは合金が用いられ、Al、In、Mg、Ti、Mg/Ag合金、Al/Li合金等が用いられる。また、その成膜方法についても特に制限するものではなく、本実施の形態で示した抵抗加熱蒸着法以外にも、イオンビームスパッタ法、マグネトロンスパッタ法、電子ビーム蒸着法等の他の方法であったとしても成膜中に有機材料の耐熱温度を超えるまで温度が上昇しなければどのような成膜方法であっても良い。さらに素子外表面上に蒸着法やスパッタリング、塗布法等により大気中の酸素や水分の影響を遮断するための保護膜を設ける場合もある。その材料としては、GeO<sub>2</sub>、SiO<sub>2</sub>、SiO<sub>x</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、等の無機酸化物、熱硬化性、光硬化性の樹脂や封止硬化のあるシラン系的高分子材料等が挙げられる。

【0024】保持金具5は有機EL素子形成及び封止の一連の製造工程において、ITO基板を固定可能な構造であればよく、例えばクランプ機構を有するものが挙げられる。封止材移動機構8は真空チャンバー1内に配設された支持部8aと、前記支持部8a移動停止自在に支持され上部に封止材載置部を備えた封止材移動部8bとを備えたもので、例えば水平方向の直動機構により封止材移動部8bを移動させることができる。接着剤硬化装置9は真空チャンバー1の天井部に配設された高圧水銀灯等の紫外線照射装置や、YAGレーザ、赤外線ランプ等加熱装置等が挙げられる。基板搬送押圧機構10は前記封止材移動部8bと直交方向に移動し加圧できるもの

であればよく、例えばボールネジ等を用いた直動機構等が挙げられる。

【0025】次に、本実施の形態による有機EL素子の封止方法について説明する。図3(a)、(b)、

(c)は本発明の一実施の形態における有機EL素子の形成工程から封止工程までの各工程を示した模式図である。図3(a)は真空チャンバー中で有機EL素子を形成する工程図である。保持金具5に保持させたITO基板3上に有機EL素子部4を形成する。尚、正孔輸送層の形成から陰極の形成までは同一真空チャンバー中で行ったが、素子形成時に素子が大気にさらされることがなければ各層を別々の真空チャンバー中で形成しても良い。

【0026】図3(b)は連続した一連の真空チャンバー中で有機EL素子の構成部分と、接着部を有する封止材とを対向するように配置する工程図である。真空チャンバー1内の真空度は特に制限するものではないが有機EL素子部4への水分の侵入を抑えるためには10<sup>-4</sup>Torr以下の減圧下で行うのが好ましい。まず、封止材6を封止材移動機構8により移動させる。具体的な配置については特に制限するものではないが、接着の容易性、接着剤の垂れ防止等の点から図3(b)のように有機EL素子部4の下部に封止材6を配置するのが好ましい。本発明に用いられる封止材6としては外部からの水分や酸素の侵入が少ない材料であれば特に限定されるものではなく、例えばガラス、液晶性ポリマー、高分子フィルム、金属等が挙げられる。さらに封止材6の形状についても特に限定するものではなく、例えば平面状のものや、図3(b)に示すように封止材に凹凸を設け、有機EL素子部4と封止材6とが接触することを防ぐことのできるような形状を挙げることができる。また、接着剤としては外部からの水分や酸素の侵入が少ない材料であれば特に限定されるものではなく、例えば光硬化性樹脂、低融点ガラス、エポキシ樹脂、液晶性ポリマー等が挙げられる。中でも、透湿性が低く接着時間が早いという理由から光硬化性樹脂、低融点ガラスが好ましい。

【0027】光硬化性樹脂としては、カチオン硬化型、ラジカル硬化型等が知られているが、本発明において最も好ましく用いられるものはカチオン硬化型である。

【0028】図3(c)は一連の真空チャンバー内でITO基板と封止材とを接着する工程である。ITO基板3若しくは封止材6の少なくとも1つを基板搬送押圧機構10により移動させ、ITO基板3と封止材6の接着部とを密着し押圧させる。尚、本実施の形態では、ITO基板の移動を直動機構で行ったが、移動機構については特に制限するものではなく、ITO基板と封止材とを搬送押圧できるものであればどのような機構であっても良い。次に密着押圧後、接着剤硬化装置9によりITO基板3と封止材6とを接着する。このようにして有機EL素子を封止した後、真空チャンバーを常圧に戻し素子



を取り出す。なお本実施の形態では真空中において封止する場合についてのみ示したが、有機EL素子の形成工程から封止工程までの間、有機EL素子が大気に触れることがなければどのような方法であってもよく、例えば真空チャンパー中に不活性ガスを導入した後素子封止を行う方法等が挙げられる。この場合の不活性ガスは水分を含有しないことが必要であり、例えば低露点のAr、He、Ne、N<sub>2</sub>、等が挙げられる。中でも、露点-80℃以下のものが好ましい。

【0029】次に、本発明の実施例について説明する。 10

【0030】

【実施例】

（実施例1）まず、実施の形態1で示したように有機EL素子を形成した。有機層の蒸着速度は5/sで行った。さらに有機EL素子上部に抵抗加熱法により酸化ゲルマニウム(GeO)を5000Å蒸着し、保護膜を形成した。なお、ガラス基板は4cm×4cmのものを使用し、その中央部に1cm<sup>2</sup>の有機EL素子を形成した。次に、同一真空チャンパー中に予め準備しておいた封止材を素子下部に移動させる。封止材としてはHOYA製の1mm厚の白板ガラスを用い、有機EL素子の構成部分と対向する2.5cm<sup>2</sup>の部分はサンドブラスト法により0.3mmくり貫いた。これにより、封止材が有機EL素子に接触して素子を破壊することを防ぐことができる。なお、サンドブラスト法の変わりにホーニング法を用いても良い。また、この封止材には接着剤として予め紫外線硬化型接着剤（大日本インキ社製DEFENSA OP-48）を約10μm塗布しておいた。膜厚については特に制限するものではないが、3~1000μmが好ましい。続いて、基板搬送押圧機構により素子の保持金具を下げITO基板と封止材とを重ね合わせた。 20

【0031】ここで、接着剤である光硬化性樹脂は、封止までの間真空チャンパー中で脱泡されているため樹脂層の内部に気泡が残ることは少ないが、これをより確実なものとするためにITO基板側、封止材側の両面から基板搬送押圧機構を用いて4kgf/cm<sup>2</sup>で加圧し気泡を追い出した。次に、接着剤硬化装置として高圧水銀ランプを用い、真空チャンパー上部より紫外線を照射し光硬化性樹脂を硬化させた。この時、有機EL素子に紫外線が照射されるのを防ぐため、有機EL素子形成工程の初期から接着部以外の部分には金属マスクを被覆した。以上のようにして、有機EL素子の形成工程から封止工程までを真空中で連続して行った有機EL素子を作製し、これをサンプル1とした。 40

【0032】（実施例2）実施例1において光硬化性樹脂をイオン重合タイプ（協立化学産業（株）製W/RXCA-01）に代えて、同様に有機EL素子を作製した。これをサンプル2とした。

【0033】（実施例3）実施例1、2と同様にして、 50

有機EL素子及び保護膜の形成、さらに光硬化性樹脂を塗布した封止材の移動を行った。次に、リークバルブより真空チャンパー中にN<sub>2</sub>ガスを導入し常圧まで戻した。このN<sub>2</sub>ガスには、液体窒素トラップを通して極微量な水分まで取り除き純度99.9999%以上、露点-80℃以下としたものを使用した。以下、実施例1で示したものと同様な方法で封止材の接着を行うことで、素子表面に水を吸着させることなく封止までを終えることができ、かつ封止素子内部を不活性ガスで充填させることができた。これをサンプル3とした。

【0034】（比較例）実施例1、2及び3で示した本発明による有機EL素子の封止効果を確認するため、保護膜まで形成した後真空チャンパーから取り出し、続いてN<sub>2</sub>雰囲気中で封止を行った有機EL素子を作製した。この従来法による比較例の有機EL素子は、素子形成後一度大気中に取り出した以外は材料、構成、成膜条件等全て同じとした。これをサンプル4とした。

【0035】次に、実施例1、2及び3と比較例で得られた有機EL素子を用いてダークスポットの成長を比較した。試験はこれら4つの素子を40℃90%の同一環境チャンパー中に保存し、ダークスポットの成長を観察した。図4に各素子の保存時間とダークスポットの大きさとの関係を示す。この図4より明らかなように、素子形成から封止までを大気に触れることなく行った本実施例1、2及び3の有機EL素子は、比較例の素子形成後一度大気に曝された後封止したものに比べダークスポットの成長が大幅に抑えられていることがわかった。

【0036】

【発明の効果】以上のように本発明の有機EL素子の封止方法によって、有機材料、電極材の劣化を招く水分の吸着及び進入を完全に防止し、長寿命化が可能な信頼性の高い有機EL素子を得ることができる。

【0037】本発明の請求項1に記載の有機EL素子の製造方法によれば、有機EL素子の形成工程から封止材による封止工程までの工程を大気に曝すことなく行うこととしたものであり、これによりEL素子部への水分や酸素の吸着及び接触を完全に抑えることができ、有機材料、電極材の劣化を招く水分の吸着及び進入を完全に防止し、長寿命化が可能な信頼性の高い高品質の有機EL素子を得ることができる。

【0038】本発明の請求項2に記載の有機EL素子の製造方法は、請求項1において、前記有機EL素子の形成工程から封止材による封止工程までを $1 \times 10^{-1}$  Torr ~  $1 \times 10^{-10}$  Torr 好ましくは $1 \times 10^{-4}$  Torr ~  $1 \times 10^{-6}$  Torr の真空装置下で行うこととしたものであり、これによりEL素子部への水分や酸素工程の吸着及び接触を完全に抑えることができ、有機材料、電極材の劣化を招く水分の吸着及び進入を完全に防止し、長寿命化が可能な信頼性の高い高品質の有機EL素子を得ることができる。



【0039】本発明の請求項3に記載の有機EL素子の製造方法は、請求項1又は2において、透明または半透明の基板と封止材の少なくとも一部分を光硬化性樹脂によって接着する接着工程を有することとしたものであり、これにより、光硬化性樹脂の高耐湿性により外部からの水分や酸素を完全に遮断することができ、有機材料、電極材の劣化を招く水分の吸着及び進入を完全に防止し、長寿命化が可能な信頼性の高い高品質の有機EL素子を得ることができる。また、接着時間を短くすることができるので有機EL素子の生産性を高めることができる。

【0040】本発明の請求項4に記載の有機EL素子の製造装置は、真空チャンバーと、前記真空チャンバーに接続された真空装置と、前記真空チャンバー内に配設された有機EL素子若しくは封止剤のいずれかを搬送し前記有機EL素子及び封止材を押圧する搬送押圧手段及び前記有機EL素子と前記封止材の間に形成された接着剤層を硬化させる硬化手段と、を有することとしたものであり、これにより、有機EL素子の製造装置内で簡便に有機EL素子基板と封止材とを接着することができ、高い生産性で極めて高品質の有機EL素子を低原価で量産できる。

【0041】本発明の請求項5に記載の有機EL素子の製造方法は、請求項4において、前記硬化手段が紫外線照射装置であることとしたものであり、これにより、有機EL素子の製造装置内で簡便に有機EL素子基板と封止材とを接着することができ、高い生産性で極めて高品質の有機EL素子を低原価で量産できる。また、硬化時の熱による劣化がなく、信頼性の高い有機EL素子を高い生産性で量産することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の一実施の形態における有機EL素子の

製造装置の断面模式図

【図2】本発明の一実施の形態における有機EL素子の断面模式図

【図3】(a)は真空チャンバー中で有機EL素子を形成する工程図

(b)は連続した一連の真空チャンバー中で有機EL素子の構成部分と、接着部を有する封止材とを対向するように配置する工程図

(c)は一連の真空チャンバー内でITO基板と封止材とを接着する工程図

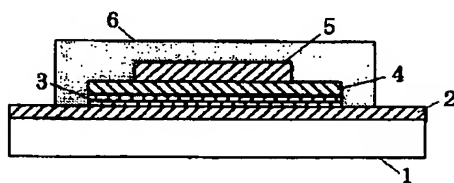
【図4】本発明の一実施の形態における有機EL素子と従来素子のダークスポット成長を比較した図

【図5】一般的な有機EL素子の要部断面図

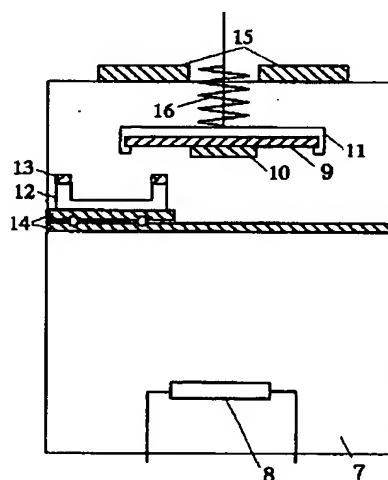
【符号の説明】

- 1 真空チャンバー
- 2 蒸着源
- 3 ITO基板
- 4 有機EL素子部
- 5 保持金具
- 6 封止材
- 7 接着部
- 8 封止材移動機構
- 8a 支持部
- 8b 封止材移動部
- 9 接着剤硬化装置
- 10 基板搬送押圧機構
- 11 ガラス基板
- 12 陽極層
- 13 正孔輸送層
- 14 発光層
- 15 陰極層
- 16 保護膜

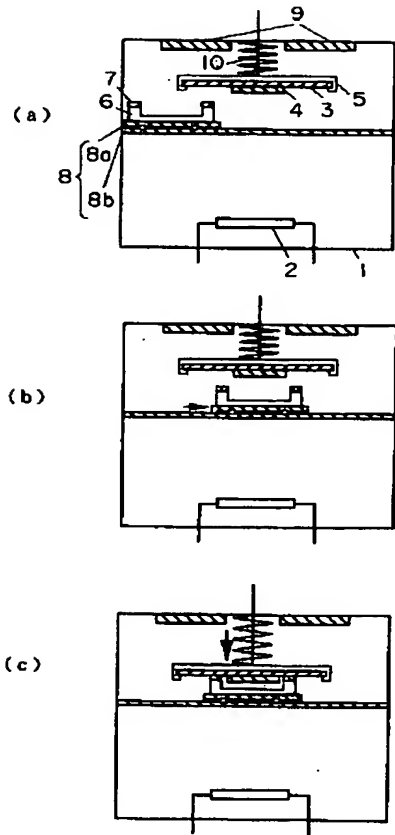
【図1】



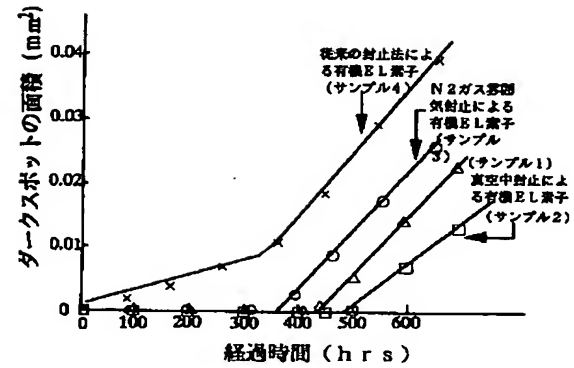
【図2】



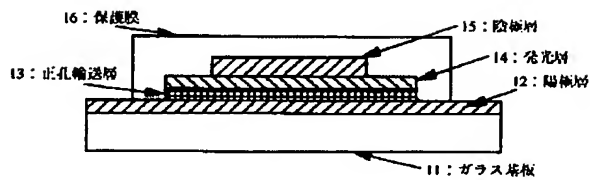
【図 3】



【図 4】



【図 5】



フロントページの続き

(72)発明者 原 慎太郎  
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器  
産業株式会社内